# 日本国特許庁

PATENT OFFICE
JAPANESE GOVERNMENT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日 Date of Application:

2000年 4月21日

出 願 番 号 Application Number:

特願2000-121562

出 願 人 Applicant (s):

三菱化学フォームプラスティック株式会社

2001年 3月16日

特 許 庁 長 官 Commissioner, Patent Office





(13

8/23/01

【書類名】 特許願

【整理番号】 P-7266

【提出日】 平成12年 4月21日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 B29C 44/00

【発明の名称】 ポリオレフィン系樹脂複合成形体

【請求項の数】 4

【発明者】

【住所又は居所】 三重県四日市市大字六呂見653-2 三菱化学フォー

ムプラスティック株式会社四日市工場内

【氏名】 田中 雅典

【発明者】

【住所又は居所】 三重県四日市市大字六呂見653-2 三菱化学フォー

ムプラスティック株式会社四日市工場内

【氏名】 横山 正明

【特許出願人】

【識別番号】 599050893

【氏名又は名称】 三菱化学フォームプラスティック株式会社

【代理人】

【識別番号】 100089244

【弁理士】

【氏名又は名称】 遠山 勉

【選任した代理人】

【識別番号】 100090516

【弁理士】

【氏名又は名称】 松倉 秀実

【選任した代理人】

【識別番号】 100100549

【弁理士】

【氏名又は名称】 川口 嘉之

【連絡先】

03 - 3669 - 6571

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 012092

【納付金額】

21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】

明細書 1

【物件名】

図面 1

【物件名】

要約書 1

【プルーフの要否】 要

# 【書類名】 明細書

【発明の名称】 ポリオレフィン系樹脂複合成形体

#### 【特許請求の範囲】

【請求項1】 表皮層と発泡体層、或いは表皮層と発泡体層と基材とから構成されるポリオレフィン系樹脂複合成形体において、

前記発泡体層を、結晶性熱可塑性樹脂からなる発泡状態の芯層と、該芯層を被 覆するポリエチレン系樹脂被覆層とからなる熱可塑性発泡樹脂粒子を加熱成形し て互いに融着させた発泡体層によって構成し、表皮層を、融点が前記粒子の被覆 層を構成するポリエチレン系樹脂の融点より5℃以上高い熱可塑性合成樹脂で構 成したことを特徴とするポリオレフィン系樹脂複合成形体。

【請求項2】 表皮層を構成する熱可塑性合成樹脂がポリオレフィン系樹脂であることを特徴とする請求項1に記載のポリオレフィン系樹脂複合成形体。

【請求項3】 発泡体層の圧縮硬さが0.05~0.7MPaであることを特徴とする請求項1又は2に記載のポリオレフィン系樹脂複合成形体。

【請求項4】 発泡体層の空隙率を1~40%としたことを特徴とする請求項1~3のいずれかに記載のポリオレフィン系樹脂複合成形体。

#### 【発明の詳細な説明】

#### [0001]

#### 【発明の属する技術分野】

本発明はポリオレフィン系樹脂複合成形体に関し、更に詳細には熱可塑性発泡 樹脂粒子を用いたポリオレフィン系樹脂複合成形体に関する。

#### [0002]

## 【従来の技術】

従来、車両用内装部材には、ソリッド樹脂からなる基材と表皮との間に発泡層を介在させることにより、ソフト感を付加して高級化を図ったものがあり、このような車両用内装部材の製造方法は、特許掲載公報(特許第2500645号)に開示されている。

## [0003]

上記特許掲載公報に開示された車両用内装部材の製造方法は、ポリプロピレン

製の表皮用シートを一方の成形型に設置し、他方の成形型にはポリプロピレン製でフィラー入りのソリッド樹脂からなる基材を設置し、これら表皮用シートと基材との間の空間部にポリプロピレンからなる発泡樹脂粒子を充填し、粒子同士を融着して発泡体層とした成形体を形成するものである。

# [0004]

#### 【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、従来の成形体製造技術では、発泡樹脂粒子の融着を行う際に高温又は高圧蒸気加熱を必要とするため、表皮層の表面品質が加熱時に熱によって劣化するという問題があった。そのため、内装部材として表皮面に意匠的なデザインを施した場合にそのデザインが目立ち難くなるという問題があった。また、低温で成形すると、発泡樹脂粒子同士の融着が悪くなると共に表皮層と発泡層の接着、及び発泡層と基材との接着も悪くなるという問題があった。

#### [0005]

更に、前述したような従来の複合成形体製造技術では、表皮用シートと発泡樹脂粒子との接着性を上げるため、高温の蒸気で長い間加熱する必要が生じ、そのため加熱融着時に、発泡樹脂粒子の空隙又は粒子の中に水分が気体状態で多量に浸入し、この状態で冷却すると水分が気体から液体の状態に凝縮し、大きく体積収縮を起こす。

#### [0006]

このため、発泡樹脂粒子の空隙又は粒子の中が減圧状態になり、かかる粒子からなる発泡成形体が収縮、変形することになり、形状安定性が悪く、型通りの成形体が得られ難く、しかも表皮の表面外観が悪いという問題があった。また、発泡成形体においては、発泡樹脂粒子が充分に融着して、機械的強度が高いことも要求される。

#### [0007]

本発明者は、従来の発泡体層を備える複合成形体におけるこのような問題に対して鋭意研究した結果、表皮層の表面品質を劣化させることがない程度の温度で発泡体層の成形ができ、発泡体層と表皮層又は/及び基材との接着性に優れた成形技術を開発し、樹脂複合成形体を得た。

## [0008]

## 【課題を解決するための手段】

本発明はポリオレフィン系樹脂複合成形体であり、前述した技術的課題を解決するために以下のように構成されている。すなわち、本発明は、表皮層と発泡体層、或いは表皮層と発泡体層と基材とから構成されるポリオレフィン系樹脂複合成形体において、前記発泡体層を、結晶性熱可塑性樹脂からなる発泡状態の芯層と、該芯層を被覆するポリエチレン系樹脂被覆層とからなる熱可塑性発泡樹脂粒子を加熱成形して互いに融着させた発泡体層によって構成し、表皮層を、融点が前記粒子の被覆層を構成するポリエチレン系樹脂の融点より5℃以上高い熱可塑性合成樹脂で構成したことを特徴とする。

## [0009]

#### <本発明における具体的構成>

本発明のポリオレフィン系樹脂複合成形体は、前述した必須の構成要素からなるが、その構成要素が具体的に以下のような場合であっても成立する。その具体的構成要素とは、表皮層を構成する熱可塑性合成樹脂がポリオレフィン系樹脂であることを特徴とする。また、発泡体層の圧縮硬さを0.05~0.7MPaとすることも好ましい。更に、発泡体層の空隙率を1~40%とすることも好ましい。

#### [0010]

## 【発明の実施の形態】

本発明のポリオレフィン系樹脂複合成形体を構成する発泡体層は、特定の芯層とこれを被覆する被覆層とからなる発泡樹脂粒子を用いている。そのため、発泡樹脂成形体の製造時に従来加熱媒体として用いられてきた高温・高圧のスチーム(水蒸気)を使用せず、比較的低温・低圧のスチームや乾燥ガスからなる熱風にて加熱することで発泡樹脂成形体を得ることができる。

#### [0011]

芯層は、通常、結晶性の熱可塑性樹脂にて構成される。かかる結晶性の熱可塑性樹脂としては、例えば、ポリエチレン系樹脂、ポリプロピレン系樹脂、ポリブ テン系樹脂、ポリメチルペンテン系樹脂、ポリエステル系樹脂、ポリアミド系樹 脂、フッ素系樹脂、結晶性スチレン系樹脂などが挙げられる。この中でも、プロピレン単独重合体、プロピレンとプロピレン以外のαーオレフィンとのランダム共重合体やブロック共重合体が好ましい。これにより、安価でリサイクル性に優れ、軽量で断熱性及び緩衝性に優れた樹脂複合成形体を得ることができる。

## [0012]

被覆層は、実質的に非発泡状態であることが好ましい。「実質的に非発泡状態」とは、気泡構造のないフィルム状態を意味する。また、そのフィルム状態は穴が開いていても良く、例えば網目状態のものであっても良い。また、被覆層は上記芯層の熱可塑性樹脂より融点が低いか、又は実質的に融点を示さないエチレン系重合体を含有する。被覆層の融点は上記芯層を構成する熱可塑性樹脂の融点より15℃以上低いことが好ましく、熱可塑性樹脂との温度差は、好ましくは20~60℃、より好ましくは20~40℃の範囲である。

## [0013]

「実質的に融点を示さない」とは非晶質な樹脂であるため示差走査熱量計による融点測定を行っても結晶融点を示さないものを意味する。但し、比較的低温で樹脂同士が融着することから被覆層として使用し得る。このような熱可塑性樹脂の場合、仮の融点を100℃として芯材を構成する結晶性熱可塑性樹脂との融点差を計算する(後述する表皮層との融点差を云う場合も同様である)。

#### [0014]

かかる低融点のエチレン系重合体としては、高圧法低密度ポリエチレン、直鎖 状低密度ポリエチレン、直鎖状超低密度ポリエチレンの他、酢酸ビニル、不飽和 カルボン酸エステル、不飽和カルボン酸、ビニルアルコール等とエチレンの共重 合体が挙げられる。

## [0015]

実質的に融点を示さないエチレン系重合体としては、例えば、エチレン・プロピレンゴム、エチレン・プロピレン・ジエンゴム、エチレン・アクリルゴム、塩素化ポリエチレンゴム、クロロスルホン化ポリエチレンゴム等のゴム・エラストマーが挙げられる。

これらのエチレン系重合体は、単独使用の他、2種以上の組成物として使用す

ることができる。

# [0016]

上記の被覆層を構成するエチレン系重合体の中では、高圧法低密度ポリエチレン、直鎖状低密度ポリエチレン、直鎖状超低密度ポリエチレンが好ましい。中でもメタロセン触媒を使用して重合された直鎖状低密度ポリエチレン、直鎖状超低密度ポリエチレンが最も好ましい。

## [0017]

被覆層を構成する上記のエチレン系重合体の融点は実質的にないか、又は融点があったとしても125℃以下であることが好ましい。その理由は、発泡樹脂粒子を成形する際の加熱温度をより低温に設定することができるからである。更に、被覆層としては、芯層を構成する熱可塑性樹脂に対し、15℃以上低い融点のエチレン系重合体を選択して使用するのが好ましい。

#### [0018]

上記の融点差が15℃未満の場合、芯層の熱可塑性樹脂を発泡させる条件下に おいては、エチレン系重合体からなる被覆層が発泡する虞がある。

また、上記の被覆層は、上記エチレン系重合体と、芯層と同種の結晶性熱可塑性樹脂との混合物であることが好ましい。これにより、被覆層と芯層との接着性が向上する。

#### [0019]

被覆層における熱可塑性樹脂の配合割合は、エチレン系重合体100重量部に対し、1~100重量部の範囲から選択されることが好ましい。熱可塑性樹脂の配合割合が1重量部未満の場合には、芯層と被覆層との接着性向上の効果が低くなるおそれがある。また、100重量部を超える場合には、被覆層の海島形態が変化し、熱可塑性樹脂が連続した海の相を構成することとなり、成形時の加熱温度があまり低くならない。

#### [0020]

更に、熱可塑性樹脂の混合割合は、エチレン系重合体100重量部に対し、1 ~50重量部の範囲であることが望ましい。これにより、芯層と被覆層との接着 性が向上し、また成形時の加熱温度を低くすることができる。

## [0021]

発泡樹脂粒子において、被覆層の厚さは1~150μmであることが好ましい。被覆層の厚さが1μm未満の場合には、成形の際、加熱温度を十分に低下させる効果が少ない。一方、被覆層の厚さが150μmを超える場合には、成形の際、加熱温度は下げることができるものの、被覆層における実質的に非発泡性部分の割合が大きく、成形体の機械的強度が発泡倍率の割には低くなる傾向にある。

更には、被覆層の厚みは10~100μmであることが好ましい。これにより、成形の際に加熱温度を下げることができ、且つ樹脂複合成形体の機械的強度を 高めることができる。

#### [0022]

図1に本発明のポリオレフィン系樹脂複合成形体に係る発泡体層を構成する発 泡樹脂粒子1を示す。図1に示す如く、発泡樹脂粒子1の長径Lと短径DとのL /D比は0.5~3程度である。0.5未満の場合には、被覆層3の表面積が少 なくなり、融着不良をもたらす。また、L/D比が3を超える場合には、粒子形 状が細長となり、充填効率が悪化し、成形不良や形状安定性の低下をもたらす。

L/D比は、 $1.5\sim3$ と比較的大きい場合には空隙の多い成形体を得やすくなるが、成形性の点から、 $0.8\sim2$ であることが好ましい。また、発泡体層を

構成する発泡樹脂粒子1の短径Dの平均即ち平均粒子径は、1~6mm、好まし

# [0024]

くは $1.5\sim4.0$ mmがよい。

[0023]

発泡樹脂粒子1は、例えば、図1に示されるように結晶性の熱可塑性樹脂からなる芯層2と、熱可塑性樹脂より融点が低いか、又は実質的に融点を示さないエチレン系重合体を含有する被覆層3にて構成される複合体粒子に揮発性発泡剤を含浸させた後、加熱発泡して得られる。

#### [0025]

上記の揮発性発泡剤としては、プロパン、ブタン、ペンタン、ヘプタン、シクロペンタン、シクロヘキサン等の低級脂肪族炭化水素類、ジクロロジフロロメタン、トリクロロモノフロロメタン等のハロゲン化炭化水素、窒素、空気、炭酸ガ

ス等の無機ガス等が挙げられ、これらは、単独又は2種類以上組み合わせて使用 される。

## [0026]

発泡樹脂粒子は、蒸気や熱風にて加熱成形される。ここで、熱風の場合は、電熱ヒーター、蒸気ヒーター等の加熱手段により空気を加熱して得られる。また、ブロアー、圧縮空気を利用して供給すると、発泡樹脂粒子を効率よく加熱することができる。更に、熱風を回収、循環する方式を利用することにより熱エネルギーのロスを少なくすることができる。

# [0027]

熱風を用いる場合は水蒸気が50KPa以下の乾燥ガスが好適に用いられる。 これにより、加熱成形時に発泡樹脂粒子の空隙又は粒子の中に水蒸気が浸入する ことを防止でき、樹脂複合成形体の形状安定性を確保できる。

また、加熱成形時における、発泡樹脂粒子の加熱温度は、芯層となる結晶性の熱可塑性樹脂の融点よりも低い温度で行う。好ましくは、上記樹脂の融点より5 ℃以上低い温度が望ましい。さらに、好ましくは融点より10℃以上低い温度が 望ましい。また、被覆層の融点以上の加熱温度で成形される。

# [0028]

発泡樹脂粒子を加熱成形する際には、発泡樹脂粒子の圧縮状態は、成形体に要求される物性により適宜設定するが、圧縮を小さくすれば、発泡樹脂粒子同士の接触面積が少ない空隙のある成形体が得られる。本発明では、発泡体層の空隙率は、1%~40%であることが好ましい。なお、加熱と圧縮とは、何れを先に行っても良い。また、圧縮は加熱中であっても良い。

#### [0029]

発泡樹脂粒子の加熱成形は、該発泡樹脂粒子の嵩容積を50~99%に圧縮して、見かけ密度を高くした状態で行うことが好ましい。50%よりも小さい状態に圧縮する場合には、殆ど空隙のない状態の樹脂複合成形体が得られることになり、樹脂複合成形体の密度が大きくなり過ぎる。99%よりも大きい場合には、発泡樹脂粒子同士の接触面積がより小さくなり融着強度の弱い樹脂複合成形体になる。

## [0030]

また、発泡体層の圧縮硬さは、 $0.05\sim0.7MPa$  (JIS K6767に準拠して測定)であることが好ましく、特に $0.07\sim0.6MPa$ にあることが好ましい。

圧縮硬さが 0.7 M P a を超えると、発泡体層の発泡樹脂粒子が硬く、表皮層に粒子の痕跡が出やすく表面外観を損なうと共に、クッション性が劣る。また、 0.05 M P a 以下であると発泡体層の発泡樹脂粒子がやわらかくなり表皮層に 皺が発生しやすくなり、やはり表面外観を損なうと共に発泡樹脂成形体としての 強度が低下する。

# [0031]

また、発泡樹脂粒子は、結晶性の熱可塑性樹脂からなる独立気泡体である芯層とエチレン重合体を含有する実質的にフィルム状の被覆層とから構成されている。そのため、型内に充填された発泡樹脂粒子間の空隙に、熱容量の比較的に小さい蒸気や熱風を通過させることにより、被覆層よりも融点が高い芯層の軟化を抑えながら、被覆層が融着するのに必要な温度まで発泡樹脂粒子を加熱でき、その後、芯層が保有する圧縮反力を有効に活用して発泡樹脂粒子を融着させた樹脂複合成形体を得ることができる。

#### [0032]

前述した発泡樹脂粒子は、発泡状態の芯層と、この芯層を被覆する実質的に非発泡状態のポリエチレン系樹脂被覆層とから構成される複合構造を有する。発泡状態の芯層は、例えば、独立気泡構造又は連続気泡構造を有するが、独立気泡構造を有することが好ましい。その理由は、独立気泡構造は、加熱成形時の芯層の圧縮反力が高く、低密度でも圧縮強度が高いからである。芯層の独立気泡率は50%以上が好ましく、更には70%以上であることが好ましい。これにより、加熱成形時の芯層の圧縮反力が更に高くなり、また低密度でも圧縮強度が高い樹脂複合成形体を得ることができる。

#### [0033]

本発明に用いる発泡樹脂粒子は、成形型内に入れ、比較的低温・低圧のスチームや乾燥ガスからなる熱風を用いて融着させれば、加熱成形時に、高温・高圧ス

チームを用いた場合に比べて発泡樹脂粒子の空隙又は粒子の中には、水蒸気の浸入が少ない。それゆえ、水蒸気の凝縮による体積収縮に伴う成形体の体積収縮も少なく、その結果この樹脂複合成形体は形状安定性に優れている。また、寸法及び収縮変形を矯正するための高温養生処理も不要若しくは短時間で済む。

## [0034]

また、比較的低温・低圧の水蒸気や乾燥ガスによる加熱成形では、従来の発泡 樹脂粒子の加熱成形時に用いられていた高圧蒸気圧に耐える構造の重量ある金型 が不要であり、熱エネルギーの消費量も少ない。また、熱可塑性樹脂からなる表 皮と発泡樹脂粒子とを型内で一体成形を行う場合には、水蒸気の水分の影響によ る融着不良が少なくなるため、熱可塑性樹脂からなる表皮層と発泡樹脂粒子の被 覆層とが強固に融着する。従って、本発明の樹脂複合成形体は融着強度が高く、 機械的強度に優れている。

#### [0035]

このような発泡樹脂粒子からなる発泡体層と積層状態で融着一体化される表皮層及び基材は発泡樹脂粒子を成形する金型に予め配置しておくか、発泡樹脂粒子を所定形状に成形後融着する等して積層すればよい。

表皮層としては、発泡樹脂粒子(発泡樹脂粒子の被覆層)との熱融着性を保持 しつつ表面特性を維持するため粒子の被覆層を構成するポリエチレン系樹脂の融 点(実質的に融点を示さない場合は前記と同様に考える)より5℃以上融点の高 い熱可塑性合成樹脂が用いられる。

#### [0036]

表皮層を構成する樹脂の具体例としては、ポリエチレン系樹脂、ポリプロピレン系樹脂、ポリオレフィン系エラストマー等のポリオレフィン系樹脂が好適に用いられる。これらポリオレフィン系樹脂は、単独使用の他2種以上の組成物であっても良い。表皮層としては、発泡樹脂粒子の被覆層の融点より5℃以上、好ましくは10℃以上融点の高い熱可塑性樹脂から構成されていることが肝要である

また、表皮層は単層のみならず、多層のものも用いられ、フィルム状、シート 状、予めある程度成形された真空成形品、圧縮成形品、スラッシュ成形品、イン ジェクション成形品などが用いられ、その厚みは、0.3~5mm程度のものが 使用される。

# [0037]

本発明の複合体を製造する一例として金型成形が挙げられる。具体的には、加熱空気や蒸気によって加熱可能とされた金型に表皮層を配置し、要すれば他方側に、比較的硬質の合成樹脂板等からなる基材を配置し、表皮層の裏側(表皮層と基材との間)に発泡樹脂粒子を充填し、加熱空気や蒸気によって加熱し、発泡樹脂粒子同士および発泡樹脂粒子と表皮層(および基材)との融着を行い一体化する方式が一般的に用いられているが、この際、発泡樹脂粒子同士が融着する温度で加熱しても表皮層のシボ模様等の凹凸模様が消えたり、不鮮明になったり、表皮層の光沢が悪くなったりしないための条件が、上記した融点差である。

# [0038]

成型法としては上記に止まらず、図2、図3に示したような、表皮層を真空成形し、表皮層が固化する前に予め成形しておいた発泡体層を押し込んで融着一体化する方法、または発泡体層の上に表皮層を圧着する方法等が考えられる。この場合、真空成形型にシボ模様を形成しておけば表皮層に模様づけも行える。

#### [0039]

表皮層の反対側に設けられる基材としては通常は比較的硬質のポリオレフィン 系樹脂が用いられる。この基材は一般には形状保持、車体等の他の物への固定保 持部として用いられ、表面には露出しないので表面模様等に気を付ける必要はな い。

基材の材質としては発泡体との接着性を考慮し、ポリオレフィン系樹脂を用いるのが良い。

発泡体、表皮層、基材を全てポリオレフィン系樹脂で構成すれば、回収品等を 粉砕、リサイクルする際に再生がし易く好ましい。

#### [0040]

一般的な成形方法は、表皮層と基材を各々配置した型内に、発泡樹脂粒子を充填した後、型内に充填された発泡樹脂粒子間の間隙に加熱蒸気や熱風を通過させて加熱し、発泡樹脂粒子を融着させた後、冷却して複合成形体を形成するが、図

2及び図3に示されるようにして複合成形体を形成することもできる。

## [0041]

すなわち、図2に示されるように表皮層10の上下面側にヒータ11aを内蔵した2つの熱板11を移動させて位置決めし、これを挟んで両面を加熱し、表皮層10の表面を所定温度に加熱した後に熱板11を元の位置に移動させ、表皮層10を真空成形型12に配置し、次いで真空成形型12にあけた多数の穴13から真空引きをして表皮層10を真空成形型12に密着させる。

## [0042]

その後、図3に示すように、真空成形型12に密着配置された表皮層10の所定位置に、既に説明したようにして予め成形された発泡樹脂粒子からなる発泡体層14の一方の面を、表皮10の表面が軟化高温状態にある内に押し付ける。この発泡体層14の他方の面には予め基材が配置されている。次いで、もう1つの型を被せて複合成形体を形成する。このように、予め成形された発泡体層14を、表皮層が配置された型内に入れて最終成形品を形成することもできる。

## [0043]

図4は、本発明のポリオレフィン系樹脂複合成形体を自動車のダッシュボードの成形に適用した場合における当該成形体の一部を破断して示す断面図である。 このダッシュボード15は、図4に示されるように表皮層10と発泡体層14と 基材16とから構成されている。

#### [0044]

表皮層10は、ポリプロピレン系樹脂からなるシートで形成され、表面には梨地模様が施されている。この表皮層10はポリエチレン系、ポリプロピレン系、スチレンーブチレンースチレンブロック共重合体(SEBS)等で形成することもできる。また、基材16はポリプロピレン製でフィラーの入ったソリッド樹脂からなり、この基材16と表皮層10とに充填されている発泡体層14は、前述した熱可塑性発泡樹脂粒子を用いて形成されている。

#### [0045]

このように本発明のポリオレフィン系樹脂複合成形体を、例えば自動車などの ダッシュボードとして形成した場合、表皮層10の表面に梨地模様などを形成し た場合でも、発泡体層を構成する発泡樹脂粒子の被覆層の融点が、表皮層のそれより5℃以上低く、その結果発泡樹脂粒子同士が融着する温度に加熱しても表皮層の模様が樹脂複合成形体の製造時に損なわれるようなことがない。

## [0046]

また、発泡体層の圧縮硬さを、O. O 5~O. 7MPaとすることにより、表皮層の表面外観がよく且つクッション性に優れ、しかも樹脂複合成形体としての所定強度も得ることができることから、車両のダッシュボード等への適用に特に好ましい。

## [0047]

## 【実施例】

次に、本発明におけるポリオレフィン系樹脂複合成形体を実施例より更に詳細 に説明するが、本発明は、その要旨を越えない限り、以下の実施例に限定される ものではない。

# (実施例1)

内径40mmの単軸押出し機を使用してエチレン含量1.5重量%のエチレン・プロピレンランダム共重合体(融点153℃)を混練し、内径26mmの単軸押出し機を使用して密度0.907のメタロセン触媒で重合された直鎖状低密度ポリエチレン(融点100℃)を混練した。次いで、直径1.5mmのダイオリフィースを有するダイから、エチレン・プロピレンランダム共重合体を芯層とし、直鎖状低密度ポリエチレンを被覆層としてストランドを押し出した。

# [0048]

さらに、このストランドを、水槽を通して冷却した後、1.2 mgに切断した。この複合体粒子の断面を位相差顕微鏡により観察したところ、厚さ30μmの直鎖状低密度ポリエチレンがエチレン・プロピレンランダム共重合体を被覆していた。

#### [0049]

次に、密閉容器内に上記の複合体粒子100重量部、水250重量部、粒径0.3~0.5μmの第三リン酸カルシウム1.0重量部及びドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム0.007重量部を仕込み、次いで、攪拌下にてブタン20

重量部を密閉容器内へ供給した。内容物を充填率62%で充填した後、一時間かけて145℃まで昇温して同温度で30分間保持した。

## [0050]

その後、密閉容器の底部にある放出孔の弁を開くと共に外部より密閉容器内の気相部へ窒素ガスを導入し、容器内の圧力を保持しつつ内容物を大気圧下へ放出して発泡樹脂粒子を得た。こうして得られた発泡樹脂粒子は、平均嵩密度  $1.7~{\rm K}$  g/m $^3$ 、平均気泡径  $2.3~{\rm O}~{\rm \mu}$  mであり、発泡樹脂粒子同士のブロッキングもなかった。

## [0051]

この発泡樹脂粒子の断面を位相差顕微鏡にて観察したところ、芯層のエチレン・プロピレンランダム共重合体は、独立気泡の発泡状態にあり、一方、直鎖状低密度ポリエチレンは、実質的に非発泡のフィルム状態で、エチレン・プロピレンランダム共重合体の発泡状態の芯層を被覆していた。発泡樹脂粒子の長径Lと短径DとのL/Dは、0.9である。

#### [0052]

この発泡樹脂粒子を40℃の乾燥室にて完全に乾燥し、表皮層(材質:ポリプロピレン系樹脂シート、厚さ:0.8mm、融点:153℃)と基材(材質:ポリプロピレン系樹脂、厚さ:4mm、融点164℃)を各々配置した通気性のある型内に、この発泡樹脂粒子を充填した後、型内に充填された発泡樹脂粒子間の間隙に熱風を通過させて、発泡樹脂粒子の表面温度を120℃に加熱し、次いで、型内容積を60%に減容した状態で、発泡樹脂粒子を融着させた。その後、空気にて冷却し、型内より複合成形体を取り出した。発泡体層の密度は28Kg/m³であり、成形体の大きさは縦200mm、幅300mm、厚み40mmであり、含水もなく、収縮変形のない型通りの形状であった。

#### [0053]

#### (実施例2~5、比較例1~2)

実施例2~5、比較例1~2においては、表1に示すごとく、芯層の樹脂及び 状態、被覆層の樹脂及び状態、平均嵩密度、L/D比、表皮層の樹脂及び状態、 加熱成形温度、圧縮率を変えて、発泡成形体を製造した。その他は、実施例1と 同様に製造した。

[0054]

【表1】

比較例 2 融着せず **劃定不可** 船池 HDPE 135 125 30 8 倒定不可 散着せず **光敷**愈 ET-PR 153 ET-PR 142 ET-PR 153 発泡 兔泡 130 30 <u>&</u> 実質非発泡 M-LLDPE 100 実施例 ET-PR 153 発泡 HDPE 131 <u>~</u> = 2 40 82 0 実質非発泡 ET-PR 141 実施例 LLDPE 123 HDPE 135 発泡 28 35 ∞ 0 <u>∞</u> က 実質非発泡 実施例3 LLDPE 123 ET · PR 141 発泡 125 9 30 24 0 17 実質非発泡 M-LLDPE 100 実施例 ET-PR 153 ET-PR 153 殺狗 125 10 20 30 0 <u>8</u> M-LLDPE 100 実質非発泡 実施例 ET-PR 153 発泡 ET-PR 153 13 130 49 82 တ 0 平均萬密度(Kg/m³) 発泡体層 黃瓷度(Kg/m³) 空隙率 <u>ද</u> 被覆層の樹脂 融点(C) 表皮層の樹脂 融点(°C) 被覆層の状態 お層の機脂 機点(%C) 压备路(%) 加熱成形溫展 芯層の状態 LDK 融着試験

ET-PR:エチレン - プロピレンランダム共重合体

M LLDPE:メタロセン触媒で重合された直鎖状低密度ポリエチレン

(表1)

LLDPE:直鎖状低密度ポリエチレン

HDPE:高密度ポリエチレン

<sup>○:</sup>発冶体層が表皮層と一体化、接着し、収縮変形等外観不良のないもの。

ス:発泡体層が表皮層と分離したり、表皮に変形、収縮等が観られるもの。

上記実施例 1 ~ 5 及び比較例 1 ~ 2 の物性について、以下の方法により測定した。

# く点癌〉

示差走査熱量計(DSC)により測定した。先ず、 $3\sim5$  mgの樹脂をその結晶が融解する温度まで昇温後、10  $\mathbb{C}/\mathcal{G}$  の速度で室温まで冷却した。次いで、10  $\mathbb{C}/\mathcal{G}$  の速度で加熱昇温し、得られる吸熱曲線のピーク温度をもって融点とした。

[0056]

〈発泡体層の嵩密度〉

最終成形品より発泡体層を切り出し、単位体積当たりの重量(Kg/m<sup>3</sup>)を 測定した。

〈発泡体層の圧縮率〉

【式1】

#### 〈空隙率〉

内径150mm、容積5リットルの目盛り付メスシリンダー内に水3リットルを入れ、寸法100×100×30mm(体積0.3リットル)の発泡体層試験片を水没させて、このときの水面の示す容積V(リットル)を測定し、式(2)により空隙率を求めた。

【式2】

$$\{1-(V-3)/0.3\} \times 100\%$$
 ......式(2)

[0057]

〈表皮の融着状況〉

型内より取り出した複合成形体を温度20℃に放置し、30分後の外観を目視 にて判定した。

[0058]

なお、前述した本発明の実施例5は、自動車などのダッシュボードを例に挙げて説明したが、本発明はこのような用途に限定されるものではなく、緩衝性能、断熱性能、又は遮音性能を必要とする内装材、例えば断熱パネル、或いは椅子や机などの家具類等に適用することができることは勿論である。

## [0059]

# 【発明の効果】

以上説明したように、本発明のポリオレフィン系樹脂複合成形体によれば、表皮層の表面品質を劣化させることがない程度の温度で発泡体層の成形ができ、発 泡体層と表皮層又は/及び基材との接着性に優れた樹脂複合成形体を得ることが できる。

## [0060]

また、本発明のポリオレフィン系樹脂複合成形体によれば、熱可塑性樹脂発泡粒子における被覆層の融点が、表皮層の融点より低く設定されているため、表皮層の外観が損なわれず、また発泡体層に空隙を持たせているため、吸音効果もあり、更に発泡樹脂粒子の平均粒子径が小さいため複合成形体の厚みをより薄くすることができる等優れた効果を奏する。

# 【図面の簡単な説明】

#### 【図1】

本発明のポリオレフィン系樹脂複合成形体を構成する発泡体層の熱可塑性発泡 樹脂粒子を示す斜視図である。

#### 【図2】

本発明のポリオレフィン系樹脂複合成形体の形成する際の工程途中を示す概略的な断面図である。

#### 【図3】

図2に示される樹脂複合成形体の形成工程に引き続く工程を概略的に示す断面 図である。

#### 【図4】

本発明のポリオレフィン系樹脂複合成形体を自動車のダッシュボードに適用した一実施形態の部分的な断面図である。

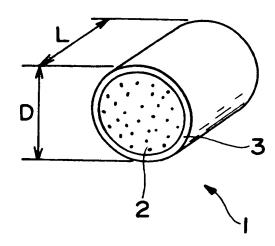
# 【符号の説明】

- 1 熱可塑性発泡樹脂粒子
- 2 芯層
- 3 被覆層
- 10 表皮層
- 11 熱板
- 11a ヒータ
- 12 真空成形型
- 13 真空引き通路(穴)
- 14 発泡体
- 15 ポリオレフィン系樹脂複合成形体からなるダッシュボードの一部
- 16 基材

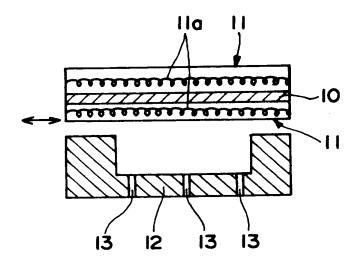
【書類名】

図面

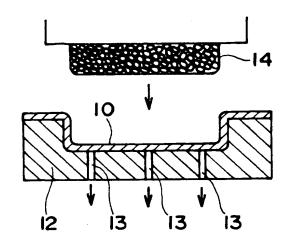
【図1】



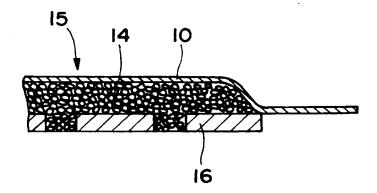
【図2】



【図3】



【図4】



【書類名】

要約書

【要約】

【課題】 表皮層の表面品質を劣化させることがない程度の温度で発泡体層の成形ができ、発泡体層と表皮層又は/及び基材との接着性に優れた成形技術を開発し、樹脂複合成形体を得ること。

【解決手段】 表皮層10と発泡体層14、或いは表皮層10と発泡体層14と基材16とから構成されるポリオレフィン系樹脂複合成形体において、発泡体層14を、結晶性熱可塑性樹脂からなる発泡状態の芯層と、これを被覆するポリエチレン系樹脂被覆層とからなる熱可塑性発泡樹脂粒子を加熱成形して互いに融着させた発泡体層によって構成し、表皮層10を、融点が前記粒子の被覆層を構成するポリエチレン系樹脂の融点より5℃以上高い熱可塑性合成樹脂で構成したことを特徴とする。

【選択図】 図4

# 出願人履歴情報

識別番号

[599050893]

1. 変更年月日

1999年 4月13日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都千代田区有楽町一丁目10番1号

氏 名

三菱化学フォームプラスティック株式会社